

⑤

Int. Cl. 3:

**C 08 L 67/02**

① **BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND**

C 08 K 9/04

C 08 K 7/10

C 08 K 3/36

C 08 K 7/14

C 08 K 3/22

**DEUTSCHES PATENTAMT**



**DE 29 17 941 A 1**

⑪

# **Offenlegungsschrift 29 17 941**

⑫

Aktenzeichen: P 29 17 941.7

⑬

Anmeldetag: 4. 5. 79

⑭

Offenlegungstag: 13. 11. 80

⑮

Unionspriorität:

⑯ ⑰ ⑱ —

⑲

Bezeichnung: Modifizierte Polyester-Zusammensetzungen

⑳

Anmelder: General Electric Co., Schenectady, N.Y. (V.St.A.)

㉑

Vertreter: Schüler, H., Dipl.-Chem. Dr. rer.nat., Pat.-Anw., 6000 Frankfurt

㉒

Erfinder: Goedde, Edwin Joseph, Mt. Vernon, Ind.;  
Holub, Fred Frank, Schenectady, N.Y.; Wilson, Phillip Steven, Louisville,  
Ky. (V.St.A.)

**DE 29 17 941 A 1**

Dr. rer. nat. Horst Schüler  
PATENTANWALT

6000 Frankfurt/Main 1, 3. Mai 1979  
Kaiserstraße 41 Dr. Sch/We/Hk  
Telefon (0611) 235555  
Telex: 04-16759 mapat d  
Postscheck-Konto: 282420-602 Frankfurt-M.  
Bankkonto: 225/0389  
Deutsche Bank AG, Frankfurt/M.

8041-8CH-2297

GENERAL ELECTRIC COMPANY  
1 River Road  
Schenectady, N.Y./U.S.A.

Patentansprüche

1. Thermoplastische Zusammensetzung, d a d u r c h g e k e n n -  
z e i c h n e t , daß sie enthält:
  - (a) eine Polyesterzusammensetzung, die in inniger Mischung ein  
Poly(1,4-butylen-terephthalat)-Harz und ein Poly(äthylen-  
terephthalat)-Harz aufweist und
  - (b) ein Modifizierungsmittel in einer Menge bis zu 60 Gewichts-  
teilen pro 100 Gewichtsteile von (a) und (b), welches  
aufweist:
    - (I) ein Silan-behandeltes Aluminiumoxid,
    - (II) nadelförmiges Calciummetalsilikat,
    - (III) eine Kombination aus einem segmentierten Copolyester  
und einem aromatischen Polycarbonat, oder
    - (IV) Novaculit, oder eine Mischung derselben.
2. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n -  
z e i c h n e t , daß das Modifizierungsmittel (b) in einer  
Menge von wenigstens etwa 1,0 Gew.-%, bezogen auf (a) und (b)  
vorliegt.

030046/0255

3. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß das Modifizierungsmittel (b) in einer Menge von etwa 2,5 bis etwa 50 Gew.-%, bezogen auf (a) und (b) vorliegt.
4. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß sie verstärkende Glasfasern in einer Menge von etwa 1 bis etwa 60 Gew.-%, bezogen auf (a), (b) und die Glasfasern aufweist.
5. Thermoplastische Zusammensetzung nach Anspruch 4, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß der Bestandteil (a) Glasfasern aufweist, die in der innigen Mischung aus einem Poly(1,4-butylen-terephthalat) und einem Poly(äthylen-terephthalat) vordispersiert sind.
6. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß die Polyesterharze (a) eine grundmolare Viskosität von wenigstens etwa 0,4 dl/g, gemessen in einer Lösung aus einer 60 : 40-Mischung von Phenol und Trichloräthan bei 30°C aufweisen.
7. Zusammensetzung nach Anspruch 6, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß die Polyester eine grundmolare Viskosität von wenigstens etwa 0,6 dl/g, gemessen in einer Lösung aus einer 60 : 40-Mischung von Phenol und Trichloräthan bei 30°C aufweisen.
8. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß das Poly(1,4-butylen-terephthalat)-Harz linear oder verzweigt ist.
9. Zusammensetzung nach Anspruch 8, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß der verzweigte Polyester ein(1,4-Butylen-terephthalat)-Harz mit hoher Schmelzviskosität ist, welches

eine geringe Menge einer Verzweigungskomponente enthält, die wenigstens drei Ester-bildende Gruppen aufweist.

10. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß das Modifizierungsmittel (b) ein Silan-behandeltes Aluminiumoxid ist.
11. Zusammensetzung nach Anspruch 10, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß das Modifizierungsmittel (b) ein Aminosilan-behandeltes Aluminiumoxid ist.
12. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß das Modifizierungsmittel (b) nadel-förmiges Calciummetasilikat ist.
13. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß das Modifizierungsmittel (b) eine Kombination aus einem segmentierten Copolyester und einem aromatischen Polycarbonat ist.
14. Zusammensetzung nach Anspruch 1, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß das Modifizierungsmittel (b) Novaculit ist.
15. Thermoplastische Zusammensetzung, d a d u r c h g e k e n n - z e i c h n e t , daß sie enthält:
  - (a) ein Poly(1,4-butylen-terephthalat) und
  - (b) ein Modifizierungsmittel/<sup>dafür,</sup> welches in Kombination enthält:
    - (V) ein Aminosilan-behandeltes Aluminiumoxid und
    - (VI) einen segmentierten Copolyester.
16. Thermoplastische Zusammensetzung nach Anspruch 15, d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t , daß sie weiterhin verstärkende Glasfasern in einer Menge von etwa 1 bis 60 Gew.-%, bezogen auf das Gewicht von (a), (b) und von den Glasfasern enthält.

17. Thermoplastische Zusammensetzung nach Anspruch 16,  
dadurch gekennzeichnet, daß der  
Bestandteil (a) Glasfasern enthält, die in dem Poly(1,4-buty-  
len-terephthalat) vordispersiert sind.

030046/0255

Dr. rer. nat. Horst Schüler  
PATENTANWALT

6000 Frankfurt/Main 1, 3. Mai 1979  
Kaiserstraße 41 Dr. Sch./We./Hk  
Telefon (0611) 235555  
Telex: 04-16759 mapat d  
Postcheck-Konto: 282420-602 Frankfurt-M.  
Bankkonto: 225/0389  
Deutsche Bank AG, Frankfurt/M.

8041-8CH-2297

GENERAL ELECTRIC COMPANY  
1 River Road  
Schenectady, N.Y./U.S.A.

---

Modifizierte Polyester-Zusammensetzungen

---

Die Erfindung betrifft modifizierte thermoplastische Polyester-Zusammensetzungen, die leichter zu Gegenständen mit verbesserter Dimensionsstabilität ausformbar sind. Die Erfindung betrifft insbesondere Zusammensetzungen aus einem Poly(1,4-butylen-terephthalat)-Harz und fakultativ einem Poly(äthylenterephthalat)-Harz, die mit einer wirksamen Menge eines mineralischen Füllstoffes oder einer harzartigen Kombination modifiziert sind.

Hochmolekulare lineare Polyester und Copolyester aus Glykolen und Terephthalsäure oder Isophthalsäure sind bereits seit einer Reihe von Jahren verfügbar. Dieselben sind unter anderem in den US-Patenten 2 465 319 (Whinfield et al) und 3 047 539 (Pengilly) beschrieben, und der Offenbarungsgehalt dieser beiden Patentschriften wird durch diese Bezugnahme in vollem Umfang in die vorliegende Anmeldung aufgenommen.

030046/0255

Diese Patente offenbaren, daß die Polyester als Film und Faserbildner besonders vorteilhaft sind.

Mit der Entwicklung der Molekulargewichtssteuerung, der Verwendung von kernbildenden Mitteln und den zweistufigen Ausformzyklen ist Poly(äthylen-terephthalat) ein wichtiger Bestandteil für im Spritzgußverfahren ausformbare Zusammensetzungen geworden. Poly(1,4-butylen-terephthalat) ist wegen seiner sehr schnellen Kristallisation aus der Schmelze von einmaliger Brauchbarkeit als Bestandteil in solchen Zusammensetzungen. Werkstücke, die aus solchen Polyesterharzen ausgeformt sind, weisen im Vergleich mit anderen Thermoplasten eine hohe Oberflächenhärte und Abriebfestigkeit, hohen Glanz und geringe Oberflächenreibung auf.

Stabile Mischungen aus Poly(1,4-butylen-terephthalat) und Poly(äthylenterephthalat) können unverstärkt und verstärkt zu brauchbaren Gegenständen ausgeformt werden. In diesem Zusammenhang wird auf das US-Patent 3 953 394 (Fox und Wambach) Bezug genommen, dessen Offenbarungsgehalt durch diese Bezugnahme in vollem Umfange in die vorliegende Anmeldung aufgenommen wird. Es wurde nunmehr gefunden, daß solche Polyester und Polymischungen hinsichtlich der Verarbeitbarkeit und der Dimensionsstabilität ganz wesentlich verbessert werden können durch innige Zumischung einer ausgewählten Familie von Modifizierungsmitteln.

Gemäß einem Gesichtspunkt der vorliegenden Erfindung werden thermoplastische Zusammensetzungen geschaffen, die für Ausformzwecke, beispielsweise für das Spritzgießen, Formpressen, Preßspritzen und dergleichen, brauchbar sind und welche enthalten:

- (a) eine Polyesterzusammensetzung, die in inniger Mischung ein Poly(1,4-butylen-terephthalat)-Harz und ein Poly(äthylen-terephthalat)-Harz aufweist und
- (b) eine Menge von bis zu 60 Gewichtsteilen eines Modifizierungsmittels pro 100 Gewichtsteile von (a) und (b), welches
  - (I) ein Silan-behandeltes Aluminiumoxid,
  - (II) nadelförmiges Calciummetasilikat,

- (III) eine Kombination aus einem segmentierten Copolyester und einem aromatischen Polycarbonat oder
- (IV) Novaculit oder eine Mischung derselben aufweist.

Gemäß einem zweiten Gesichtspunkt der vorliegenden Erfindung werden thermoplastische Zusammensetzungen geschaffen, die enthalten:

- (a) ein Poly(1,4-butylen-terephthalat) und
- (b) ein Modifizierungsmittel dafür, welches in Kombination
- (V) ein Aminosilan-behandeltes Aluminiumoxid und
- (VI) einen segmentierten Copolyester aufweist.

Die Polyesterharze der erfindungsgemäßen Zusammensetzungen sind im Handel erhältlich oder sie können nach bekannten Verfahrenstechniken hergestellt werden, wie beispielsweise durch die Alkoholyse von Estern der Terephthalsäure mit Äthylenglykol oder Butandiol und anschließende Polymerisation, durch Erhitzen der Glykole mit den freien Säuren oder mit Halogenderivaten derselben sowie nach ähnlichen Verfahren. Dieselben sind in den US-Patenten 2 465 319 und 3 047 539 sowie an anderen Stellen beschrieben.

Zur Erläuterung sei bemerkt, daß diese hochmolekularen Polyester eine grundmolare Viskositätszahl (intrinsic viscosity) von wenigstens etwa 0,4 dl/g und vorzugsweise von wenigstens 0,6 dl/g gemessen in einer 60 : 40 Phenol/Tetrachloräthanmischung bei 30° C aufweisen.

In den Fällen, in denen hohe Schmelzfestigkeit wichtig ist, sind verzweigte Poly(1,4-butylen-terephthalat)-Harze mit hoher Schmelzviskosität besonders brauchbar, welche eine geringe Menge beispielsweise bis zu 5 Mol-% einer Verzweigungskomponente mit wenigstens 3 Ester bildenden Gruppen bezogen auf die Terephthalateinheiten aufweisen. Die Verzweigungskomponente kann eine solche sein, die eine Verzweigung in dem Säureteil des Polyesters oder in dem Glykolteil des Polyesters liefert oder es kann auch ein

030046/0255



Hybrid sein. Beispiele solcher Verzweigungskomponenten sind Tri- oder Tetracarbonsäuren, wie Trimesinsäure, Pyromellithsäure und die niederen Alkylester derselben und der- gleichen oder vorzugsweise Polyole und besonders bevorzugt Tetrole, wie Pentaerythritol, Triole, wie Trimethylolpropan, oder Dihydroxycarbonsäuren und Hydroxydicarbonsäuren und Derivate derselben, wie Dimethylhydroxyterephthalat und dergleichen.

Die verzweigten Poly(1,4-butylen-terephthalat)-Harze und ihre Herstellung sind in dem US-Patent 3 953 404 (Borman) beschrieben. Der Offenbarungsgehalt dieser Veröffentlichung wird durch diese Bezugnahme in vollem Umfang in die vorliegende Anmeldung aufgenommen.

In gewissen bevorzugten Ausführungsformen enthält die Zusammensetzung verstärkende fadenförmige Glasfasern. Das fadenförmige Glas, welches in solchen Ausführungsformen der vorliegenden Zusammensetzungen als Verstärkungsmittel verwendet wird, ist dem Fachmann wohl bekannt und von einer Vielzahl von Herstellern erhältlich. Für Zusammensetzungen, die letztlich auf elektrischem Gebiet verwendet werden, wird es bevorzugt, faserige Glasfäden zu verwenden, die aus einem Kalk-Aluminiumborsilikat-Glas zusammengesetzt sind, welches im wesentlichen sodafrei ist. Dasselbe ist als sogenanntes "E"-Glas bekannt. Andere Gläser sind jedoch ebenfalls brauchbar in den Fällen, in denen die elektrischen Eigenschaften nicht so wichtig sind, beispielsweise das bekannte "C"-Glas mit niedrigem Sodagehalt. Die Fäden werden nach Standardverfahren hergestellt, beispielsweise durch Dampf- oder Luftblasen, Flammenblasen und durch mechanisches Ziehen. Die bevorzugten Fäden für die Verstärkung von Kunststoffen werden durch mechanisches Ziehen hergestellt. Die Fadendurchmesser liegen im Bereich von etwa 0,0003 bis 0,0019 cm (0,00012 bis 0,00075 inch), wobei diese Abmessungen indessen für die vorliegende Erfindung keinen kritischen Faktor darstellen.

Die Länge der Glasfäden und ob dieselben zu Fasern gebündelt und die Fasern ihrerseits zu Garnen, Strängen oder Rovings ge-

bündelt sind oder zu Matten und dergleichen gewebt sind, ist ebenfalls für die vorliegende Erfindung nicht kritisch. Für die Herstellung der Formmassen ist es jedoch bequem, das fadenförmige Glas in Form von kurzgehackten Strängen von 3,2 bis etwa 50,8mm Länge (1/8 inch bis 2 inch) zu verwenden. In den aus den Zusammensetzungen ausgeformten Gegenständen finden sich andererseits wesentlich kürzere Längen, weil während des Zusammenmischens ein beträchtliches Zerschneiden stattfindet. Dies ist jedoch wünschenswert, weil die besten Eigenschaften mit im Spritzgußverfahren ausgeformten Gegenständen erhalten werden, in denen die Fadenlängen zwischen etwa 0,0127 mm und 6,3 mm (0,0005 und 0,250 inch) liegen.

Die Menge des verstärkenden Glases kann innerhalb weiter Grenzen variieren und zwar in Abhängigkeit von der Formulierung und den Erfordernissen der speziellen Zusammensetzung. Es ist lediglich notwendig, daß eine Menge verwendet wird, die zumindest ausreicht, um eine Verstärkung zu ergeben. Vorzugsweise beläuft sich die Menge der verstärkenden Glasfasern auf etwa 1 bis etwa 60 Gewichts-%, bezogen auf die Kombination aus Glasfasern und den Komponenten (a) und (b).

Es wurde ebenfalls festgestellt, daß die Polyesterzusammensetzungen der vorliegenden Erfindung, welche Modifizierungsmittel und anorganische Füllstoffe, beispielsweise Talk, Aluminiumoxide und dergleichen, sowie Glasfasern, enthalten, verbesserte Schlagfestigkeit und Biegeeigenschaften aufweisen, wenn das Glas in dem Harz dispergiert ist.

Es wurde weiterhin gefunden, daß selbst relativ geringe Mengen des Modifizierungsmittels (b) wirksam sind, um wesentliche Verbesserungen in der Verarbeitbarkeit usw. zu ergeben. Im allgemeinen wird das Modifizierungsmittel (b) jedoch in Mengen von wenigstens etwa 1 Gewichts-%, vorzugsweise von etwa 2,5 bis etwa 50 Gewichts-%, bezogen auf das Gewicht <sup>von</sup> (a) und (b) verwendet. Mit Mengen, die über 50 Gewichts-% liegen, kann eine Verminderung der Verarbeitbarkeit auftreten.

Das Modifizierungsmittel (b) (I), ein Silan-behandeltes Aluminiumoxid, kann durch Behandlung von feinteiligem, verstärkendem Aluminiumoxid, beispielsweise Kaolin, Clay, d. h. hydrophilem wasserhaltigem Aluminiumsilikat mit einem Silan, beispielsweise Vinyltris-2-methoxyethoxysilan unter Bildung eines Silan-behandelten, leicht dispergierbaren Aluminiumoxids hergestellt werden. Ein bevorzugtes mit Silan behandeltes Aluminiumoxid wird durch Reaktion von Kaolin mit  $\gamma$ -Aminopropyläthoxysilan unter Bildung eines Aminosilan-behandelten Aluminiumoxids hergestellt.

Das Modifizierungsmittel (b) (II), das nadelförmige Calciummetasilikat, ist als Wollastonit bekannt und ist im Handel erhältlich als Füllstoff für Polyester-, Melamin-, Epoxy-, Urethan-, Nylon- und Vinyl-Harze. Die Wirksamkeit kann durch die Verwendung von Silanen, wie vorstehend für Aluminiumoxid erwähnt, verbessert werden.

Das Modifizierungsmittel (b) (III) umfaßt eine Kombination aus einem segmentierten Blockcopolyester, beispielsweise einem Blockpolybutylen-co-polypropylenglycolterephthalat-Harz in Kombination mit einem aromatischen Polycarbonat, beispielsweise ein Bisphenol-A-Phosgen-Harzreaktionsprodukt. Diese können auf bekannten Wegen hergestellt werden, und sie sind im Handel erhältlich, beispielsweise das erstere unter der Handelsbezeichnung Hytrel 4055 von der Firma DuPont Company, Wilmington, Del., USA, und das letztere als Lexan<sup>®</sup> von der Firma General Electric Company, Pittsfield, Mass., USA. Die relativen Anteile der Komponenten in dem Modifizierungsmittel (b) (III) können innerhalb weiter Grenzen variieren, beispielsweise von 1 bis 99 Teilen des ersteren auf 99 bis 1 Teile des zweiten, im allgemeinen sind jedoch 60 bis 40 Gewichtsteile des segmentierten Copolyesters auf jeweils 40 bis 60 Gewichtsteile des aromatischen Polycarbonats in 100 Gewichtsteilen des Modifizierungsmittels (b) (III) vorhanden.

Novaculit ist eine bekannte, im Handel erhältliche kristalline

Mikroform des Siliziumdioxids. Seine Verwendung als Füllstoff für Polyester ist in dem US-Patent 3 740 371 (Segal) und in dem US-Patent 4 018 738 (Rawlings) beschrieben. Der Offenbarungsgehalt dieser beiden US-Patentschriften wird durch diese Bezugnahme in vollem Umfange in die vorliegende Patentanmeldung aufgenommen.

Eine bevorzugte, im Handel erhältliche Form des Novaculits ist eine speziell behandelte Art, die von dem Hersteller, der Firma Malvern Minerals Company, Hot Springs, Arkansas, USA als Novakup 174-.05 bezeichnet wird.

Andere Ingredienzien, wie Farbstoffe, Pigmente, flammhemmende Mittel, tropfhemmende Mittel und dergleichen, können für ihre üblichen Zwecke zugegeben werden.

Die Zusammensetzungen der vorliegenden Erfindung können nach einer Reihe von Verfahren hergestellt werden. In einem Falle können das Modifizierungsmittel und ein beliebiges Verstärkungsmittel, beispielsweise Glasfasern zusammen mit den harzartigen Komponenten in einen Extrusionsmischer gegeben werden, um die Preßpellets daraus herzustellen. Das Modifizierungsmittel und das Verstärkungsmittel, falls ein solches verwendet wird, werden bei diesem Verfahren in einer Matrix des Harzes dispergiert. In einem anderen Verfahren wird das Modifizierungsmittel mit den Harzen durch Trockenmischen gemischt und dann entweder auf einer Walze plastifiziert und zerkleinert oder sie werden extrudiert und kurzgehackt. Das Modifizierungsmittel kann ebenfalls mit den Harzen gemischt und direkt ausgeformt werden, beispielsweise durch die Spritzguß- oder Preßspritz-Verfahrenstechniken.

Es ist immer wichtig, alle Ingredienzien, das Harz, das Modifizierungsmittel, das Verstärkungsmittel, falls ein solches verwendet wird, sowie etwaige herkömmliche Zusatzstoffe soweit wie möglich von Wasser zu befreien.

Weiterhin ist bei dem Zusammenmischen darauf zu achten, daß die Verweilzeit in der Maschine kurz ist, die Temperatur sorgfältig gesteuert wird, die Reibungswärme verwendet wird und eine innige Mischung zwischen dem Harz und dem Modifizierungsmittel erhalten wird.

Obgleich nicht wesentlich, so werden doch die besten Resultate erhalten, wenn die Ingredienzien vorkompoundiert, pelletisiert und dann ausgeformt werden. Das Vorkompoundieren kann in einer herkömmlichen Vorrichtung durchgeführt werden. So kann beispielsweise nach sorgfältigem Vortrocknen des Polyesters und des Modifizierungsmittels sowie des Verstärkungsmittels, falls ein solches verwendet wird, beispielsweise durch 12-stündige Behandlung im Vakuum bei  $100^{\circ}\text{C}$ , ein Einfach-Schneckenextruder mit der trockenen Mischung der Ingredienzien beschickt werden, wobei die verwendete Schnecke einen langen Phasenübergangsteil aufweist, um ein sorgfältiges Schmelzen zu gewährleisten. Andererseits kann eine Doppel-Schneckenextrusionsmaschine, beispielsweise eine 28 mm Werner-Pfleiderer-Maschine, mit dem Harz und den Zusatzstoffen über die Einfüllöffnung beschickt werden und das Verstärkungsmittel stromabwärts zugesetzt werden. In jedem Falle liegt eine allgemein geeignete Maschinentemperatur bei etwa  $232$  bis  $238^{\circ}\text{C}$  ( $450$  bis  $460^{\circ}\text{F}$ ).

Die vorkompoundierte Zusammensetzung kann extrudiert und nach Standardverfahren zu Preßmassen, wie herkömmlichem Granulat, Pellets usw., zerkleinert werden.

Die Zusammensetzung kann in einer beliebigen Vorrichtung, wie sie herkömmlicherweise für mit Glasfasern gefüllte thermoplastische Zusammensetzungen verwendet wird, ausgeformt werden, beispielsweise einer Spritzgußmaschine vom Newbury Typ mit herkömmlichen Zylindertemperaturen, beispielsweise von  $232$  bis  $274^{\circ}\text{C}$  ( $450$  bis  $525^{\circ}\text{F}$ ) und herkömmlichen Formtemperaturen, beispielsweise von  $54$  bis  $65^{\circ}\text{C}$  ( $130$  bis  $150^{\circ}\text{F}$ ).

Die nachfolgenden Beispiele dienen zur weiteren Erläuterung der Erfindung. Sie stellen eine weitere Beschreibung dar, sie sind jedoch nicht dazu bestimmt, die Erfindung in irgendeiner Weise zu beschränken.

#### Beispiele 1 bis 4

Trockene Mischungen aus Poly(1,4-butylen-terephthalat)-Harz (PBT) mit einer grundmolaren Viskositätszahl von 1,05 dl/g und einer Schmelzviskosität von 6200 Poises, Poly(äthylen-terephthalat) (PET) mit einer grundmolaren Viskositätszahl von 0,62 dl/g und Silan-behandeltem Aluminiumoxid und Formentrennmittel/Stabilisator wurden zusammen kompondiert und bei 271°C in einem Extruder extrudiert. Das Extrudat wurde pelletisiert und im Spritzgußverfahren bei 271°C (520°F) (Formtemperatur 54°C (130°F) ) ausgeformt. Die Zusammensetzungen und die physikalischen Eigenschaften sind in der nachfolgenden Tabelle 1 aufgeführt.

Tabelle 1      Zusammensetzungen aus Polyestern und Silan-behandeltem Aluminiumoxid

<u>Beispiel</u>	<u>1A*</u>	<u>1</u>	<u>2</u>	<u>3</u>	<u>4</u>
<u>Zusammensetzung</u> <u>(Gewichtsteile)</u>					
Poly(1,4-butylen-terephthalat)	60	54	48	42	36
Poly(äthylen-terephthalat)	40	36	32	28	24
Silan-behandeltes Aluminiumoxid	--	10	20	30	40
<u>Eigenschaften</u>					
Verwerfen bzw. Verziehen bei Raumtemperatur (mm)	<1	<1	<1	<1	<1
Verwerfen bzw. Verziehen nach 30 Min. bei 176°C (mm)	>20	7	2	1	1
Ungekerbte Izodschlagfestigkeit ft-lbs/in	11,3	7,8	14,5	9,5	6,9
Gekerbte Izodschlagfestigkeit ft-lbs/in Kerbe	0,5	0,4	0,4	0,3	0,3

\* Kontrollversuch

030046/0255

Bei Verwendung des Silan-behandelten Aluminiumoxids in einer Menge von 50 phr (Teile pro 100 Teile Harz) ergaben sich Schwierigkeiten beim Ausformen. In allen Beispielen war die Verarbeitbarkeit ausgezeichnet, und die ausgeformten Gegenstände zeigten eine wesentlich verbesserte Dimensionsstabilität.

#### Beispiele 5 bis 9

Das allgemeine Verfahren nach den Beispielen 1 bis 4 wurde verwendet, um Zusammensetzungen aus Poly(1,4-butylen-terephthalat), Poly(äthylen-terephthalat) und nadelförmigen Calciummetasilikat herzustellen. Die verwendeten Formulierungen und die erhaltenen Eigenschaften sind in der nachfolgenden Tabelle 2 aufgeführt.

Tabelle 2      Zusammensetzungen aus Polyestern und nadelförmigem Calciummetasilikat

<u>Beispiele</u>	<u>5A*</u>	<u>5</u>	<u>6</u>	<u>7</u>	<u>8</u>	<u>9</u>
<u>Zusammensetzung</u> <u>(Gewichtsteile)</u>						
Poly(1,4-butylen-terephthalat)	60	54	48	42	36	30
Poly(äthylen-terephthalat)	40	36	32	28	24	20
Nadelförmiges Calciummetasilikat	--	10	20	30	40	50
<u>Eigenschaften</u>						
Hitzeverformungs- temperatur bei einem Druck von 18,5 kg/cm <sup>2</sup> (264 psi)	<sup>°C</sup> 74 <sup>°F</sup> 165	85 185	87 189	89 192	100 212	126 259
Verwerfen bzw. Verziehen bei Raum- temperatur (mm)	<1	<1	<1	<1	<1	. 1
Verwerfen bzw. Verziehen bei 177°C (350°F) nach 30 Min. (mm)	>20	3	5	14	13	12
Gekerbte Izodschlag- festigkeit ft-lbs/in Kerbe	0,5	0,5	0,5	0,6	0,7	0,7



Tabelle 2 (Fortsetzung)

<u>Beispiele</u>	<u>5A<sup>+</sup></u>	<u>5</u>	<u>6</u>	<u>7</u>	<u>8</u>	<u>9</u>
<u>Eigenschaften</u>						
Ungekerbte Izodschlag- festigkeit ft-lbs/in	11,3	4,0	5,9	7,3	6,9	4,9

---

\* Kontrollversuch

Alle Zusammensetzungen der Beispiele 5 bis 9 wurden im Vergleich zu dem Kontrollversuch leicht ausgeformt. Die Beispiele 5 und 6 waren speziell relativ verwerfungsfrei und leicht zu verarbeiten.

Beispiele 10 bis 12

Das allgemeine Verfahren der Beispiele 1 bis 4 wurde verwendet, um glasfaserverstärkte Zusammensetzungen aus Poly(1,4-butylen-terephthalat), Poly(äthylen-terephthalat) und einer modifizierenden Kombination aus einem segmentierten Copolyester und einem aromatischen Polycarbonat herzustellen. Die verwendeten Formulierungen und die erhaltenen Eigenschaften sind in der nachfolgenden Tabelle 3 aufgeführt.



Tabelle 3 Verstärkte Zusammensetzungen aus Polyestern, einem segmentierten Copolyester und einem aromatischen Polycarbonat

<u>Beispiel</u>	<u>10</u>	<u>11</u>	<u>12</u>
<u>Zusammensetzung</u> <u>(Gewichtsteile)</u>			
Poly(1,4-butylen-terephthalat)	42,5	40	40
Poly(äthylen-terephthalat)	30,0	30	30
Talk	15,0	15	15
Glasverstärkungsmittel	10,0	10	10
Mischung aus 60 Teilen segmentiertem Copolyester und 40 Teilen aromatischem Polycarbonat	2,5	5	--
Mischung aus 50 Teilen segmentiertem Copolyester und 50 Teilen aromatischem Polycarbonat	--	--	5
<u>Eigenschaften</u>			
Hitzeverformungstemperatur bei einem Druck von 18,5 kg/cm <sup>2</sup> (264 psi)	<sup>°C</sup> 183	--	181
	<sup>°F</sup> 361	--	358
Verziehen bzw. Verwerfung bei Raumtemperatur (mm)	<1	<1	<1
Verziehen bzw. Verwerfung bei 177°C (350°F) nach 30 Min. (mm)	9	10	8
Gekerbte Izodschlagfestigkeit ft-lbs/in Kerbe	1,0	1,0	0,9
Ungekerbte Izodschlagfestigkeit ft-lbs/in	8,3	8,7	8,5

Die Zusammensetzungen waren mit den Mischungen aus segmentiertem Copolyester und einem aromatischen Polycarbonat in einer sehr wirksamen Weise modifiziert, insbesondere hinsichtlich der Schlagfestigkeit.

030046/0255

Beispiele 13 bis 17

Das allgemeine Verfahren nach den Beispielen 1 bis 4 wurde verwendet, um Zusammensetzungen aus Poly(1,4-butylen-terephthalat), Poly(äthylen-terephthalat) und Novaculit herzustellen. Die verwendeten Formulierungen und die erhaltenen Eigenschaften sind in der nachfolgenden Tabelle 4 aufgeführt.

Tabelle 4    Zusammensetzungen aus Polyestern und Novaculit

<u>Beispiel</u>	<u>13A*</u>	<u>13</u>	<u>14</u>	<u>15</u>	<u>16</u>	<u>17</u>
<u>Zusammensetzung</u> <u>(Gewichtsteile)</u>						
Poly(1,4-butylen-terephthalat)	60	54	48	42	36	30
Poly(äthylen-terephthalat)	40	36	32	28	24	20
Novaculit	0	10	20	30	40	50
<u>Eigenschaften</u>						
Verziehen bzw. Verwerfung bei Raum- temperatur (mm)	<1	<1	<1	<1	<1	<1
Verziehen bzw. Verwerfung bei 177°C (350°F) (mm)	>20	15	5	4	<1	<1
Hitzeverformungs- temperatur bei 18,5 kg/cm <sup>2</sup> (264 psi)						
°C	74	76	75	78	90	--
°F	165	169	167	172	194	--
Ungekerbte Izodschlag- festigkeit ft.lbs/in	11,3	11,1	8,2	b.n.**	15,5	12,2
Gekerbte Izodschlag- festigkeit ft-lbs/in Kerbe	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5

\* Kontrollversuch

\*\* brach nicht

Alle Zusammensetzungen der Beispiele 13 bis 17 waren leicht auszuformen. Insbesondere bei 30 und 40 Teilen Novaculit ergab sich ein geringes Verwerfen und eine gute ungekerbte Izodschlagfestigkeit.

#### Beispiele 18 bis 25

Das allgemeine Verfahren der Beispiele 1 bis 4 wurde verwendet, um Zusammensetzungen aus Poly(1,4-butylen-terephthalat), Amonisilan-behandeltem Aluminiumoxid und einem segmentierten Copolyester herzustellen. Die verwendeten Formulierungen und die erhaltenen Eigenschaften sind in der nachfolgenden Tabelle 5 aufgeführt.

Tabelle 5 Zusammensetzungen aus Polyester, Glasfasern, Aminosilan-behandeltem Aluminiumoxid und segmentiertem Copolyester

<u>Beispiel</u>	<u>18</u>	<u>19</u>	<u>20</u>	<u>21</u>
<u>Zusammensetzung</u> <u>(Gewichtsteile)</u>				
Poly(1,4-butylen-terephthalat)	58	48	30	28
Mit 30% Glasfasern gefülltes Poly(1,4-butylen-terephthalat)	20	30	40	50
$\gamma$ -Aminopropylsilan-behandeltes Aluminiumoxid	14	14	14	14
Segmentierter Copolyester	7	7	7	7
Glasfaser	--	--	--	--
<u>Eigenschaften</u>				
Hitzeverformungs-temperatur bei einem Druck von 18,5 kg/cm <sup>2</sup> (264 psi)	<sup>°C</sup> 159 <sup>°F</sup> 318	149 300	171 340	177 350
Verziehen bzw. Verwerfung bei Raumtemperatur (mm)	<1	<1	<1	<1
Verziehen bzw. Verwerfung bei 177°C (350°F) nach 30 Min. (mm)	4	6	12	19
Gekerbte Izodschlagfestigkeit ft-lbs/in Kerbe	1,3	1,4	1,4	1,7
Ungekerbte Izodschlagfestigkeit ft-lbs/in	13,8	12,2	12,1	11,4
Biegefestigkeit				
kg/cm <sup>2</sup>	1.033	1.172	1.230	1.336
psi	14.700	16.700	17.500	19.000
Biegemodul				
kg/cm <sup>2</sup>	34.500	42.812	42.461	50.334
psi	491.000	609.000	604.000	716.000

030046/0255

Tabelle 5 (Fortsetzung)

<u>Beispiel</u>	<u>22</u>	<u>23</u>	<u>24</u>	<u>25</u>
Zusammensetzung (Gewichtsteile)				
Poly(1,4-butylen- terephthalat)	73	70	67	64
Mit 30% Glasfasern gefülltes Poly(1,4- butylen-terephthalat)	--	--	--	--
$\gamma$ -Aminopropylsilan- behandeltes Aluminium- oxid	14	14	14	14
Segmentierter Copoly- ester	7	7	7	7
Glasfaser	6	9	12	15
<u>Eigenschaften</u>				
Hitzeverformungstempe- ratur bei einem Druck von 18,5 kg/cm <sup>2</sup> (264 psi)	$p_C$ 140	175	179	184
Verziehen bzw. Verwerfung bei Raum- temperatur (mm)	$p_F$ 284	348	354	363
Verziehen bzw. Verwerfung bei 177°C (350°F) nach 30 Min. (mm)	1	6	6	13
Gekerbte Izodschlag- festigkeit ft-lbs/in Kerbe	8	14	17	18
Ungekerbte Izodschlag- festigkeit ft/lbs/in	1,2	1,3	1,3	1,2
Biegefestigkeit psi	12,3	9,6	9,3	9,1
kg/cm <sup>2</sup>	13.500	15.500	16.700	17.500
	949	1.089	1.174	1.230

Die Zusammensetzungen besitzen nach dem Ausformen eine geringe Verwerfung und weisen insbesondere eine ausgezeichnete Schlagfestigkeit auf. Es ist weiterhin festzustellen, daß das Vorkompoundieren der Glasfasern mit dem Polyesterharz vor dem Mischen (Beispiele 18 bis 21) mit den restlichen Ingredienzien zu einem

geringeren Verwerfen und zu verbesserter Schlagfestigkeit und Biegefestigkeit führt.

Es ist offensichtlich, daß im Rahmen der vorstehend gegebenen Lehren weitere Modifikationen und Variationen der vorliegenden Erfindung möglich sind. Derartige, in den speziellen Ausführungsformen der Erfindung gemachten Abänderungen liegen indessen im Rahmen der Erfindung, wie er durch die Patentansprüche definiert wird.